

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-036832

(43)Date of publication of application : 10.02.1998

(51)Int.Cl.

C09K 11/06
H05B 33/14

(21)Application number : 08-200754

(71)Applicant : MITSUBISHI CHEM CORP

(22)Date of filing : 30.07.1996

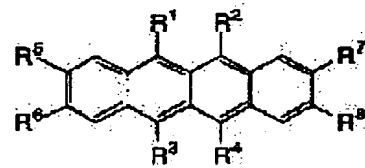
(72)Inventor : SATO YOSHIHARU

(54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain an org. electroluminescence element which can maintain stable luminescence characteristics in driving for a long period of time and has a substrate having thereon at least a hole injection layer, a hole transport layer, and a luminescence layer, the above layers being sandwiched between an anode and a cathode, by making the luminescence layer a specified compsn.

SOLUTION: This org. electroluminescence element comprises a luminescence layer composed mainly of pref. a metal complex of 8-hydroxyquinoline, which is an aluminum complex, a gallium complex, or a zinc complex using 8-hydroxyquinoline as a ligand, and contg. 0.1 to 10wt.% condensed arom. compd. which is pref. a naphthacene deriv. represented by formula I [wherein R1 to R4 represent H, a (cyclo)alkyl, an aralkyl, an alkenyl, an allyl, an arom. hydrocarbon ring, an arom. heterocycle, phenylethynyl, an amide, an alkoxy, an alkoxycarbonyl, amino, or a halogen; and R5 to R8 represent H, a halogen, an alkoxy, an alkoxycarbonyl, an alkyl, or an aralkyl].



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

03.12.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

06.01.2004

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-36832

(43) 公開日 平成10年(1998) 2月10日

(51) Int.Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 9 K 11/06			C 0 9 K 11/06	Z
H 0 5 B 33/14			H 0 5 B 33/14	

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 17 頁)

(21) 出願番号 特願平8-200754

(22) 出願日 平成8年(1996) 7月30日

(71) 出願人 000005968

三菱化学株式会社

東京都千代田区丸の内二丁目5番2号

(72) 発明者 佐藤 佳晴

神奈川県横浜市青葉区鴨志田町1000番地

三菱化学株式会社横浜総合研究所内

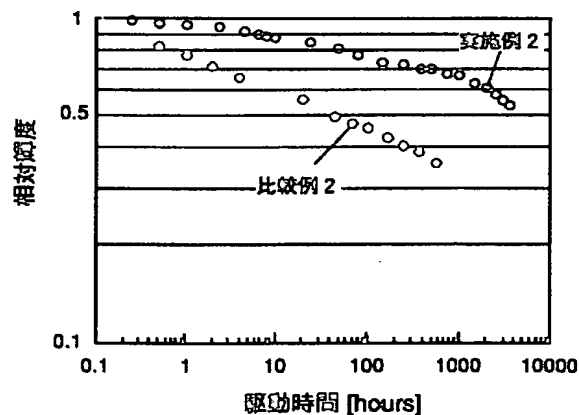
(74) 代理人 弁理士 長谷川 颯司

(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子

(57) 【要約】

【課題】 安定性に優れた有機電界発光素子を得る。

【解決手段】 基板上に、少なくとも陽極及び陰極により挟持された正孔注入層、正孔輸送層および発光層を有する有機電界発光素子であって、前記発光層は主として8-ヒドロキシキノリンの金属錯体から成り、かつ、該発光層は縮合芳香族環化合物を0.1~10重量%含有する有機電界発光素子。



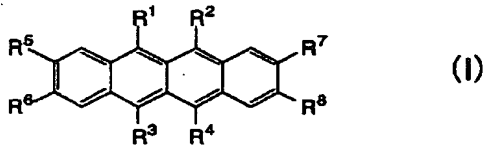
【特許請求の範囲】

【請求項1】 基板上に、少なくとも陽極及び陰極により挟持された正孔注入層、正孔輸送層および発光層を有する有機電界発光素子であって、前記発光層は主として8-ヒドロキシキノリンの金属錯体から成り、かつ、該発光層は縮合芳香族環化合物を0.1～10重量%含有することを特徴とする有機電界発光素子。

【請求項2】 8-ヒドロキシキノリンの金属錯体が、8-ヒドロキシキノリンを配位子とする、アルミニウム錯体、ガリウム錯体、または亜鉛錯体、のいずれかである請求項1に記載の有機電界発光素子。

【請求項3】 発光層に含有される縮合芳香族環化合物が、下記一般式(I)で示されるナフタセン誘導体である請求項1又は2に記載の有機電界発光素子。

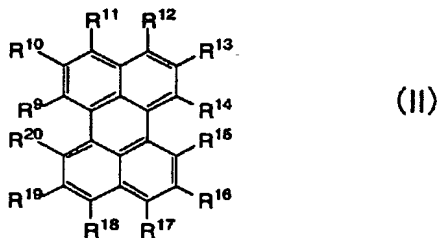
【化1】



(式中、 $R^1 \sim R^8$ は、それぞれ水素原子、置換基を有していてもよい、アルキル基、アラルキル基、アルケニル基、アリル基、シクロアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、フェニルエチニル基、アミド基、アルコキシ基、アルコキシカルボニル基もしくはアミノ基、またはハロゲン原子を示し、 $R^1 \sim R^8$ は、それぞれ水素原子、ハロゲン原子、アルコキシ基、アルコキシカルボニル基、置換基を有していてもよいアルキル基もしくはアラルキル基を示す。)

【請求項4】 発光層に含有される縮合芳香族環化合物が、下記一般式(II)で示されるペリレン誘導体である請求項1又は2に記載の有機電界発光素子。

【化2】

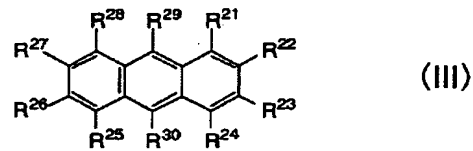


(式中、 $R^9 \sim R^{18}$ は、それぞれ水素原子、置換基を有していてもよい、アルキル基、アラルキル基、アルケニル基、アリル基、シクロアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、フェニルエチニル基、アミド基、アルコキシ基、アルコキシカルボニル基もしくはアミノ基、またはハロゲン原子を示す。)

【請求項5】 発光層に含有される縮合芳香族環化合物が、下記一般式(III)で示されるアントラセン誘導体

である請求項1又は2に記載の有機電界発光素子。

【化3】



(式中、 $R^{21} \sim R^{29}$ は、それぞれ水素原子、置換基を有していてもよい、アルキル基、アラルキル基、アルケニル基、アリル基、シクロアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、フェニルエチニル基、アミド基、アルコキシ基、アルコキシカルボニル基もしくはアミノ基、またはハロゲン原子を示す。)

【請求項6】 正孔輸送層が芳香族アミン化合物を含有していることを特徴とする請求項1～5のいずれか1項に記載の有機電界発光素子。

【請求項7】 正孔注入層がポルフィリン化合物またはフタロシアニン化合物を含有していることを特徴とする請求項1～6のいずれか1項に記載の有機電界発光素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は有機電界発光素子に関するものであり、詳しくは、有機化合物から成る発光層に電界をかけて光を放出する薄膜型デバイスに関するものである。

【0002】

【従来の技術】従来、薄膜型の電界発光(EL)素子としては、無機材料のII-VI族化合物半導体であるZnS、CaS、SrS等に、発光中心であるMnや希土類元素(Eu、Ce、Tb、Sm等)をドーブしたものが一般的であるが、上記の無機材料から作製したEL素子は、

- 1) 交流駆動が必要(50～1000Hz)、
 - 2) 駆動電圧が高い(～200V)、
 - 3) フルカラー化が困難(特に青色)、
 - 4) 周辺駆動回路のコストが高い、
- という問題点を有している。

【0003】しかし、近年、上記問題点の改良のため、有機薄膜を用いたEL素子の開発が行われるようになった。特に、発光効率を高めるため、電極からのキャリア注入の効率向上を目的として電極の種類の最適化を行い、芳香族ジアミンから成る有機正孔輸送層と8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体から成る有機発光層とを設けた有機電界発光素子の開発(Appl. Phys. Lett., 51巻, 913頁, 1987年)により、従来のアントラセン等の単結晶を用いたEL素子と比較して発光効率の大幅な改善がなされ、実用特性に近づいている。

【0004】上記の様な低分子材料を用いた電界発光素子の他にも、有機発光層の材料として、ポリ(p-フェ

ニレンビニレン) (Nature, 347巻, 539頁, 1990年他)、ポリ[2-メトキシ-5-(2-エチルヘキシルオキシ)-1,4-フェニレンビニレン] (Appl. Phys. Lett., 58巻, 1982頁, 1991年他)、ポリ(3-アルキルチオフェン) (Jpn. J. Appl. Phys., 30巻, L1938頁, 1991年他)等の高分子材料を用いた電界発光素子の開発や、ポリビニルカルバゾール等の高分子に低分子の発光材料と電子移動材料を混合した素子(応用物理, 61巻, 1044頁, 1992年)の開発も行われている。

【0005】また、例えば、8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体をホスト材料として、クマリン等のレーザ用蛍光色素をドーピングすること(J. Appl. Phys., 65巻, 3610頁, 1989年)等も行われている

【0006】

【発明が解決しようとする課題】有機電界発光素子をフラットパネル・ディスプレイやバックライト等の光源に応用するためには、素子の信頼性を十分に確保する必要がある。しかしながら、従来の有機電界発光素子では、特に素子を駆動する時に、1)輝度が低下する、2)定電流駆動では電圧が増加する(素子の抵抗が上昇する)、3)非発光部分(ダークスポット)の発生及び増加、等の劣化現象が避けられなかった。

【0007】これらの劣化現象は、陽極と正孔輸送層、発光層と陰極の2つの電極界面でのコンタクトの劣化によることが原因として考えられる。これらの劣化は、素子駆動時の局所的なジュール発熱で加速される。従って、上記の素子駆動時の劣化を防ぐためには、有機層の形状を平坦化して陽極及び陰極とのコンタクトを改善すると同時に、有機薄膜形状を熱的に安定化させることが必要である。これらの点において、従来の有機電界発光素子の駆動安定性は不十分なのが現状である。

【0008】有機電界発光素子の駆動劣化が改善されず発光特性が不安定なことは、ファクシミリ、複写機、液晶ディスプレイのバックライト等の光源としては大きな問題であり、フラットパネル・ディスプレイ等の表示素子としても望ましくない特性である。本発明者は上記実状に鑑み、長期間の駆動において安定な発光特性を維持できる有機電界発光素子を提供することを目的として鋭意検討した結果、基板上に、少なくとも陽極及び陰極により挟持された正孔注入層、正孔輸送層および発光層を有する有機電界発光素子の、主として8-ヒドロキシキノリンの金属錯体から成る発光層に、特定量の縮合芳香族環化合物をドーピングすることで上記課題を解決することができることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0009】

【課題を解決するための手段】すなわち、本発明の要旨は、基板上に、少なくとも陽極及び陰極により挟持された正孔注入層、正孔輸送層および発光層を有する有機電界発光素子であって、前記発光層は主として8-ヒドロキシキノリンの金属錯体から成り、かつ、該発光層は縮

合芳香族環化合物を0.1~10重量%含有することを特徴とする有機電界発光素子に存する。

【0010】

【発明の実施の形態】以下、本発明の有機電界発光素子の製造方法について、図面を参照しながら説明する。図1は本発明に用いられる一般的な有機電界発光素子の構造例を模式的に示す断面図であり、1は基板、2は陽極、3は正孔注入層、4は正孔輸送層、5は発光層、7は陰極を各々表わす。

【0011】基板1は有機電界発光素子の支持体となるものであり、石英やガラスの板、金属板や金属箔、プラスチックフィルムやシートなどが用いられる。特にガラス板や、ポリエステル、ポリメタクリレート、ポリカーボネート、ポリスルホンなどの透明な合成樹脂の板が好ましい。合成樹脂基板を使用する場合にはガスバリア性に留意する必要がある。基板のガスバリア性が低すぎると、基板を通過した外気により有機電界発光素子が劣化することがあるので好ましくない。このため、合成樹脂基板のどちらか片側もしくは両側に緻密なシリコン酸化膜等を設けてガスバリア性を確保する方法も好ましい方法の一つである。

【0012】基板1上には陽極2が設けられるが、陽極2は有機発光層への正孔注入の役割を果たすものである。この陽極は、通常、アルミニウム、金、銀、ニッケル、パラジウム、白金等の金属、インジウム及び/またはスズの酸化物などの金属酸化物、ヨウ化銅などのハロゲン化金属、カーボンブラック、あるいは、ポリ(3-メチルチオフェン)、ポリピロール、ポリアニリン等の導電性高分子などにより構成される。陽極2の形成は通常、スパッタリング法、真空蒸着法などにより行われることが多い。また、銀などの金属微粒子、ヨウ化銅などの微粒子、カーボンブラック、導電性の金属酸化物微粒子、導電性高分子微粉末などの場合には、適当なバインダー樹脂溶液に分散し、基板1上に塗布することにより陽極2を形成することもできる。さらに、導電性高分子の場合は電解重合により直接基板1上に薄膜を形成したり、基板1上に導電性高分子を塗布して陽極2を形成することもできる(Appl. Phys. Lett., 60巻, 2711頁, 1992年)。陽極2は異なる物質で積層して形成することも可能である。陽極2の厚みは、必要とする透明性により異なる。透明性が必要とされる場合は、可視光の透過率を、通常、60%以上、好ましくは80%以上とすることが望ましく、この場合、厚みは、通常、5~1000nm、好ましくは10~500nm程度である。不透明でよい場合は陽極2は基板1と同一でもよい。また、さらには上記の陽極2の上に異なる導電材料を積層することも可能である。

【0013】陽極2の上には正孔注入層3が設けられる。正孔注入層に用いられる材料に要求される条件としては、陽極とのコンタクトがよく均一な薄膜が形成で

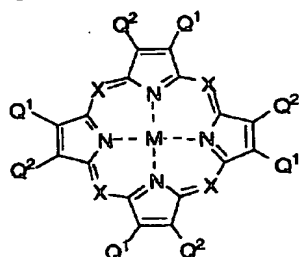
き、熱的に安定、すなわち、融点及びガラス転移温度が高く、融点としては 300°C以上、ガラス転移温度としては 100°C以上が要求される。さらに、イオン化ポテンシャルが低く陽極からの正孔注入が容易なこと、正孔移動度が大きいことが挙げられる。この目的のために、これまでにポルフィリン誘導体やフタロシアニン化合物（特開昭63-295695号公報）、スターバスト型芳香族トリアミン（特開平4-308688号公報）、ヒドラゾン化合物（特開平4-320483号公報）、アルコキシ置換の芳香族ジアミン誘導体（特開平4-220995号公報）、p-(9-アントリル)-N,N-ジ-p-トリルアニリン（特開平3-111485号公報）、ポリチエニレンビニレンやポリ-p-フェニレンビニレン（特開平4-145192号公報）、ポリアニリン（Appl. Phys. Lett., 64巻, 1245頁, 1994年参照）等が報告されている。

【0014】スターバスト型芳香族トリアミン、ヒドラゾン化合物、アルコキシ置換の芳香族ジアミン誘導体、p-(9-アントリル)-N,N-ジ-p-トリルアニリン等ではイオン化ポテンシャルが低く透明性がよいという利点はあるものの、ガラス転移点や融点が低いために耐熱性に劣り、連続駆動時の局所加熱に対する安定性が悪く、輝度低下や電圧上昇が問題となる。ポリチエニレンビニレン、ポリ-p-フェニレンビニレン、ポリアニリン等のポリマーは通常スピンコートやディップコート法等の湿式法で形成されるために、陽極上に均一なコンタクトをもって膜形成するのが困難であり、駆動寿命が改善されたという報告はない。

【0015】従って、正孔注入層3として好ましい化合物としては、ポルフィリン化合物またはフタロシアニン化合物が挙げられる。これらの化合物は中心金属を有していてもよいし、無金属のものでもよい。これらの化合物の構造式を一般式（IV）及び（V）以下に示す。

【0016】

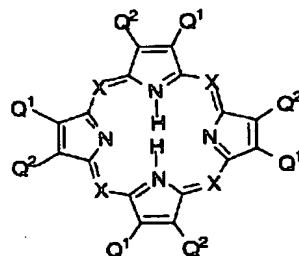
【化4】



(IV)

【0017】

【化5】



(V)

【0018】一般式（IV）及び（V）において、Xは-Nまたは-C(R)=であり；Mは金属、金属酸化物、または金属ハロゲン化合物であり、Rは水素、アルキル基、アラルキル基、またはアリール基であり；Q¹及びQ²は水素を表すか、あるいは共に不飽和六員環を形成してもよい。

【0019】好ましいこれらの化合物の具体例としては、以下の化合物が挙げられる：ポルフィン、5,10,15,20-テトラフェニル-21H,23H-ポルフィン、5,10,15,20-テトラフェニル-21H,23H-ポルフィンコバルト（II）、5,10,15,20-テトラフェニル-21H,23H-ポルフィン銅（I）、5,10,15,20-テトラフェニル-21H,23H-ポルフィン亜鉛（II）、5,10,15,20-テトラフェニル-21H,23H-ポルフィンバナジウム（IV）オキシド、5,10,15,20-テトラ（4-ピリジル）-21H,23H-ポルフィン、29H,31H-フタロシアニン、銅（II）フタロシアニン、亜鉛（II）フタロシアニン、チタンフタロシアニンオキシド、マグネシウムフタロシアニン、鉛フタロシアニン、銅（II）4,4',4'',4'''-テトラアザ-29H,31H-フタロシアニン
前記一般式（I）から成る正孔注入層3は塗布法あるいは真空蒸着法により前記陽極2上に積層することにより形成される。

【0020】塗布の場合は、上記正孔注入性化合物を1種または2種以上と、必要により正孔のトラップにならないバインダー樹脂や、レベリング剤等の塗布性改良剤などの添加剤を添加し溶解した塗布溶液を調整し、スピンコート法などの方法により陽極2上に塗布し、乾燥して正孔注入層3を形成する。バインダー樹脂としては、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステル等が挙げられる。バインダー樹脂は添加量が多いと正孔移動度を低下させるので、少ない方が望ましく、50重量%以下が好ましい。

【0021】真空蒸着法の場合には、正孔注入材料を真空容器内に設置されたルツボに入れ、真空容器内を適当な真空ポンプで10⁻⁶Torrにまで排気した後、ルツボを加熱して、正孔注入材料を蒸発させ、ルツボと向き合って置かれた基板上に層を形成する。正孔注入層を形成する場合、さらに、アクセプタとして、芳香族カルボン酸の金属錯体及び／または金属塩（特開平4-320484号公報）、ベンゾフェノン誘導体およびチオベンゾフェノン誘導体（特開平5-295361号公報）、フラーレン類（特開平5-331458号公報）を10⁻³～10重量%の濃度でドー

ブして、フリーキャリアとしての正孔を生成させ、低電圧駆動とすることが可能である。

【0022】以上の様にして形成される正孔注入層3の膜厚は、通常、3~100nm、好ましくは10~50nmである。正孔注入層3の上には正孔輸送層4が設けられる。正孔輸送層4の材料としては、正孔注入層3からの正孔注入効率が高く、かつ、注入された正孔を効率よく輸送することができる材料であることが必要である。そのためには、イオン化ポテンシャルが小さく、可視光の光に対して透明性が高く、しかも正孔移動度が大きく、さらに安定性に優れ、トラップとなる不純物が製造時や使用時に発生しにくいことが要求される。

【0023】このような正孔輸送材料としては、例えば、1,1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)シクロヘキサンの3級芳香族アミンユニットを連結した芳香族ジアミン化合物(特開昭59-194393号公報)、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニルで代表される2個以上の3級アミンを含み2個以上の縮合芳香族環が窒素原子に置換した芳香族アミン(特開平5-234681号公報)、トリフェニルベンゼンの誘導体でスターバースト構造を有する芳香族トリアミン(米国特許第4,923,774号)、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)ビフェニル-4,4'-ジアミン等の芳香族ジアミン(米国特許第4,764,625号)、 $\alpha, \alpha, \alpha', \alpha'$ -テトラメチル- α, α' -ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)-p-キシレン(特開平3-269084号公報)、分子全体として立体的に非対称なトリフェニルアミン誘導体(特開平4-129271号公報)、ビレニル基に芳香族ジアミノ基が複数個置換した化合物(特開平4-175395号公報)、エチレン基で3級芳香族アミンユニットを連結した芳香族ジアミン(特開平4-264189号公報)、スチリル構造を有する芳香族ジアミン(特開平4-290851号公報)、チオフェン基で芳香族3級アミンユニットを連結したもの(特開平4-304466号公報)、4,4',4'-トリス(N-3-メチルフェニル-N-フェニルアミノ)トリフェニルアミン、4,4',4'-トリス(N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ)トリフェニルアミン、4,4',4'-トリス(N-(2-ナフチル)-N-フェニルアミノ)トリフェニルアミン等のスターバースト型芳香族トリアミン(特開平4-308688号公報)、ベンジルフェニル化合物(特開平4-364153号公報)、フルオレン基で3級アミンを連結したもの(特開平5-25473号公報)、トリアミン化合物(特開平5-239455号公報)、ビスジビリジリアミノビフェニル(特開平5-320634号公報)、N,N,N'-トリフェニルアミン誘導体(特開平6-1972号公報)、フェノキサジン構造を有する芳香族ジアミン(特開平7-138562号公報)、ジアミノフェニルフェナントリジン誘導体(特開平7-252474号公報)、ヒドラゾン化合物(特開平2-311591号公報)、シラザン化合物(米国特許第4,950,950号公報)、シラナミン誘導体(特開平6

-49079号公報)、ホスファミン誘導体(特開平6-25659号公報)、キナクリドン化合物等が挙げられる。これらの化合物は、単独で用いてもよいし、必要に応じて、各々、混合して用いてもよい。

【0024】上記の化合物以外に、正孔輸送層4の材料として、ポリビニルカルバゾールやポリシラン(App1, Phys. Lett., 59巻, 2760頁, 1991年)、ポリフォスファゼン(特開平5-310949号公報)、ポリアミド(特開平5-310949号公報)、ポリビニルトリフェニルアミン(特開平5-53953号公報)、トリフェニルアミン骨格を有する高分子(特開平4-133065号公報)、トリフェニルアミン単位をメチレン基等で連結した高分子(Synth. Metals, 55-57巻, 4163頁, 1993年)、芳香族アミンを含有するポリメタクリレート(J. Polym. Sci., Polym. Chem. Ed., 21巻, 969頁, 1983年)等の高分子材料が挙げられる。

【0025】これらの正孔輸送材料のなかで、好ましくは、芳香族アミン化合物が正孔輸送層4として使用される。上記の正孔輸送材料を塗布法あるいは真空蒸着法により前記正孔注入層3上に積層することにより正孔輸送層4を形成する。

【0026】塗布法の場合は、正孔輸送材料を1種または2種以上と、必要により正孔のトラップにならないバインダー樹脂や塗布性改良剤などの添加剤とを添加し、溶解して塗布溶液を調製し、スピンコート法などの方法により正孔注入層3上に塗布し、乾燥して正孔輸送層4を形成する。バインダー樹脂としては、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステル等が挙げられる。バインダー樹脂は添加量が多いと正孔移動度を低下させるので、少ない方が望ましく、通常、50重量%以下が好ましい。

【0027】真空蒸着法の場合には、正孔注入層の形成で述べたと同様の方法で形成することができる。上記正孔輸送層4を形成する場合、さらに、アクセプタとして、芳香族カルボン酸の金属錯体及び/または金属塩(特開平4-320484号公報)、ベンゾフェノン誘導体およびチオベンゾフェノン誘導体(特開平5-295361号公報)、フラレーン類(特開平5-331458号公報)等を10~30重量%の濃度でドーブして、フリーキャリアとしての正孔を生成させることにより、低電圧駆動を可能にすることができる。

【0028】正孔輸送層4の膜厚は、通常、10~300 nm、好ましくは30~100 nmである。この様に薄い膜を一樣に形成するためには、一般に真空蒸着法がよく用いられる。正孔輸送層4の上には発光層5が設けられる。発光層5は、電界を与えられた電極間において陰極からの電子を効率よく正孔輸送層4の方向に輸送することができる化合物より形成される。

【0029】発光層5に用いられる電子輸送性化合物としては、陰極7からの電子注入効率が高く、かつ、注入

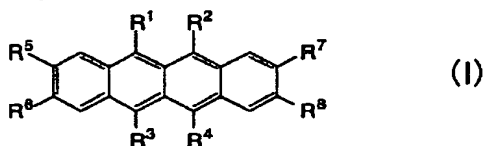
された電子を効率よく輸送することができる化合物であることが必要である。そのためには、電子親和力が大きく、しかも電子移動度が大きく、さらに安定性に優れたトラップとなる不純物が製造時や使用時に発生しにくい化合物であることが要求される。

【0030】このような条件を満たす材料としては、8-ヒドロキシキノリンの金属錯体が用いられ、好ましくは、8-ヒドロキシキノリンを配位子とするアルミニウム錯体（特開昭59-194393号公報）、8-ヒドロキシキノリンを配位子とするガリウム錯体、8-ヒドロキシキノリンを配位子とする亜鉛錯体が挙げられる。本発明においては発光層材料である前記8-ヒドロキシキノリンの金属錯体をホスト材料として、縮合芳香族化合物をドーピングすることにより、素子の発光特性、特に駆動安定性を大きく向上させることができる。

【0031】縮合芳香族化合物としては、下記一般式(I)で示されるナフタセン誘導体、下記一般式(II)で示されるペリレン誘導体、または下記一般式(III)で示されるアントラセン誘導体の少なくとも一つを用いることが好ましい。また、縮合芳香族化合物のドーピング量は、0.1~10重量%から選ばれる。

【0032】

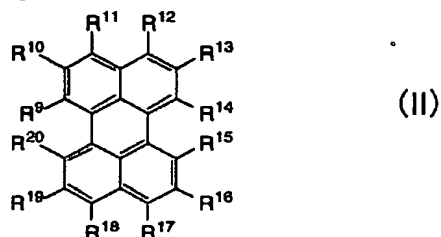
【化6】



【0033】(式中、 $R^1 \sim R^4$ は、それぞれ水素原子、置換基を有していてもよい、アルキル基、アラルキル基、アルケニル基、アリル基、シクロアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、フェニルエチニル基、アミド基、アルコキシ基、アルコキシカルボニル基もしくはアミノ基、またはハロゲン原子を示し、 $R^5 \sim R^8$ は、それぞれ水素原子、ハロゲン原子、アルコキシ基、アルコキシカルボニル基、置換基を有していてもよいアルキル基もしくはアラルキル基を示す。)

【0034】

【化7】

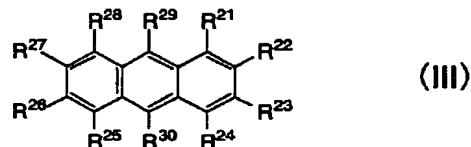


【0035】(式中、 $R^9 \sim R^{10}$ は、それぞれ水素原子、置換基を有していてもよい、アルキル基、アラルキ

ル基、アルケニル基、アリル基、シクロアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、フェニルエチニル基、アミド基、アルコキシ基、アルコキシカルボニル基もしくはアミノ基、またはハロゲン原子を示す。)

【0036】

【化8】



【0037】(式中、 $R^{21} \sim R^{30}$ は、それぞれ水素原子、置換基を有していてもよい、アルキル基、アラルキル基、アルケニル基、アリル基、シクロアルキル基、芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基、フェニルエチニル基、アミド基、アルコキシ基、アルコキシカルボニル基もしくはアミノ基、またはハロゲン原子を示す。)

【0038】前記一般式(I)のナフタセン誘導体において、 R^1 、 R^2 、 R^3 、及び R^4 としては、水素原子；メチル基、エチル基等の炭素数1~6のアルキル基；メトキシエチル基、エトキシエチル基等のアルコキシアルキル基；フェニルオキシエチル基、ナフチルオキシエチル基、p-クロロフェニルオキシエチル基等のアリールオキシアルキル基；シクロヘキシルメチル基、シクロヘキシルエチル基、シクロペンチルエチル基等のシクロアルキルアルキル基；アリルオキシエチル基、3-ブロモアリルオキシエチル基等のアルケニルオキシアルキル基；シアノエチル基、シアノメチル基等のシアノアルキル基；ヒドロキシエチル基、ヒドロキシメチル基等のヒドロキシアルキル基；テトラヒドロフリル基、テトラヒドロフリルエチル基等のテトラヒドロフリルアルキル基、等の置換アルキル基；ベンジル基、フェネチル基、p-クロロベンジル基、p-ニトロベンジル基等のアラルキル基；2-クロロアリル基等の置換または非置換アルケニル基；アリル基；シクロヘキシル基、シクロペンチル基等のシクロアルキル基；フェニル基、p-メチルフェニル基、ナフチル基、m-メトキシフェニル基等の置換または非置換の芳香族炭化水素環基；チエニル基、カルバゾル基、インドリル基、フリル基等の芳香族複素環基；フェニルエチニル基、p-メトキシフェニルエチニル基等の置換基を有していてもよいフェニルエチニル基；塩素原子、臭素原子等のハロゲン原子；アミド基；メトキシ基、エトキシ基等の炭素数1~6のアルコキシ基；メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基等の炭素数1~6のアルコキシカルボニル基；置換基を有していてもよいアミノ基が挙げられるが、好ましくは、置換又は非置換の芳香族炭化水素環基、ハロゲン原子、水素原子から選ばれる。

【0039】 R^1 、 R^2 、 R^3 及び R^4 としては水素原子；

塩素原子等のハロゲン原子；メトキシ基、エトキシ基等の炭素数1～6のアルコキシ基；メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基等の炭素数1～6のアルコキシカルボニル基；メチル基、エチル基等の炭素数1～6のアルキル基；ベンジル基、フェネチル基、p-クロロベンジル基、p-ニトロベンジル基等のアラルキル基；シクロヘキシルメチル基、シクロヘキシルエチル基、シクロペンチルエチル基等のシクロアルキルアルキル基；アリルオキシエチル基、3-ブromoアリルオキシエチル基等のアルケニルオキシアルキル基；シクロペンチル基等のシクロアルキル基等の置換基を有していてもよいアルキル基が挙げられるが、好ましくは、水素原子、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数1～6のアルキル基から選ばれる。

【0040】これらのナフタセン誘導体は公知の方法に

より合成することができ、例えば、Compt. Rend., 207巻、585頁、1938年；同 240巻、1113頁、1955年；同 239巻、1101頁、1954年；Bull. Soc. Chim. France, 418頁、1948年；同 155頁、1952年；Compt. Rend., 231巻、5頁、1950年；同 246巻、661頁、1958年；同 237巻、621頁、1953年；同 232巻、2233頁、1951年；J. Chem. Soc., 3151頁、1954年；Ann. Chim., 4巻、365頁、1959年；Tetrahedron Lett., 29巻、1359頁、1988年等に示されている。

【0041】前記一般式(I)で表されるナフタセン誘導体の具体例を、以下の表-1及び表-2に示すが、これらに限定するものではない。

【0042】

【表1】

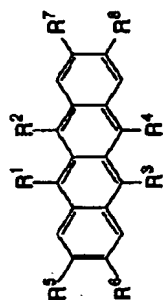


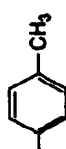
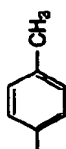
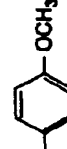
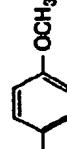





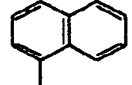
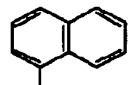


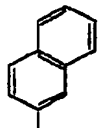
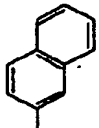



表-1

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	R ⁷	R ⁸
(1)					-H	-H	-H	-H
(2)					-H	-H	-H	-H
(3)					-H	-H	-H	-H
(4)					-OCH ₃	-H	-H	-OCH ₃
(5)					-C ₂ H ₅	-H	-H	-C ₂ H ₅
(6)		-Cl	-Cl		-H	-H	-H	-H
(7)				-H	-H	-H	-H	-H

表-2

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	R ⁷	R ⁸
(8)		H		H	H	H	H	H
(9)		H		H	H	H	H	H
(10)		H		H	H	H	H	H
(11)		H	H		H	H	H	H
(12)			H	H	H	H	H	H
(13)					H	H	H	H
(14)					H	H	H	H

【0044】前記一般式(II)のペリレン誘導体において、R¹~R⁸としては、水素原子；メチル基、エチル基等の炭素数1~6のアルキル基；メトキシエチル基、エトキシエチル基等のアルコキシアルキル基；フェニルオキシエチル基、ナフチルオキシエチル基、p-クロロフェニルオキシエチル基等のアリールオキシアルキル基；シクロヘキシルメチル基、シクロヘキシルエチル基、シクロペンチルエチル基等のシクロアルキルアルキル基；アリールオキシエチル基、3-ブロモアリールオキシエチル基等のアルケニルオキシアルキル基；シアノエチル基、シアノメチル基等のシアノアルキル基；ヒドロキ

シエチル基、ヒドロキシメチル基等のヒドロキシアルキル基；テトラヒドロフリル基、テトラヒドロフリルエチル基等のテトラヒドロフリルアルキル基等の置換アルキル基；ベンジル基、フェネチル基、p-クロロベンジル基、p-ニトロベンジル基等のアラルキル基；2-クロロアリル基等の置換または非置換アルケニル基；アリル基；シクロヘキシル基、シクロペンチル基等のシクロアルキル基；フェニル基、p-メチルフェニル基、ナフチル基、m-メトキシフェニル基等の置換または非置換の芳香族炭化水素環基；チエニル基、カルバゾル基、インドリル基、フリル基等の芳香族複素環基；フェニルエチ

ニル基、p-メトキシフェニルエチニル基等の置換基を有していてもよいフェニルエチニル基；塩素原子、臭素原子等のハロゲン原子；アミド基；メトキシ基、エトキシ基等の炭素数1～6のアルコキシ基；メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基等の炭素数1～6のアルコキシカルボニル基；置換基を有していてもよいアミノ基が挙げられるが、好ましくは、置換または非置換の芳香族炭化水素環基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数1～6のアルキル基、ハロゲン原子、水素原子から選*

* ばれる。

【0045】これらのペリレン誘導体は公知の方法により合成することができ、例えば、J. Am. Chem. Soc., 109巻, 7374頁, 1987年；J. Chem. Soc., 410頁, 1960年等に示されている。前記一般式(II)で表されるペリレン誘導体の具体例を、以下の表-3に示すが、これらに限定するものではない。

【0046】

【表3】

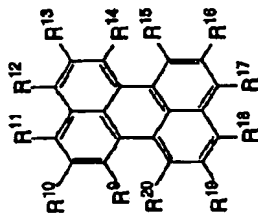






表-3

番号	R ⁰	R ¹⁰	R ¹¹	R ¹²	R ¹³	R ¹⁴	R ¹⁵	R ¹⁶	R ¹⁷	R ¹⁸	R ¹⁹	R ²⁰
(21)	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H
(22)	H	H	-CH ₃	-CH ₃	H	H	H	H	-CH ₃	-CH ₃	H	H
(23)	H	-CH ₃	H	H	-CH ₃	H	H	-CH ₃	H	H	-CH ₃	H
(24)	H	-CH ₃	H	H	H	H	H	-CH ₃	H	H	H	H
(25)	H	H	-CH ₃	H	H	H	H	H	-CH ₃	H	H	H
(26)	H	-t-Bu	H	H	-t-Bu	H	H	-t-Bu	H	H	-t-Bu	H
(27)	H	-t-Bu	H	H	H	H	H	-t-Bu	H	H	H	H
(28)	H	H	-t-Bu	H	H	H	H	H	-t-Bu	H	H	H
(29)	H		H	H		H	H		H	H		H

【0047】前記一般式(III)のアントラセン誘導体 50 において、R¹¹～R²⁰としては、水素原子；メチル基、

エチル基等の炭素数1～6のアルキル基；メトキシエチル基、エトキシエチル基等のアルコキシアルキル基；フェニルオキシエチル基、ナフチルオキシエチル基、p-クロロフェニルオキシエチル基等のアリールオキシアルキル基；シクロヘキシルメチル基、シクロヘキシルエチル基、シクロペンチルエチル基等のシクロアルキルアルキル基；アリルオキシエチル基、3-ブromoアリルオキシエチル基等のアルケニルオキシアルキル基；シアノエチル基、シアノメチル基等のシアノアルキル基；ヒドロキシエチル基、ヒドロキシメチル基等のヒドロキシアルキル基；テトラヒドロフリル基、テトラヒドロフリルエチル基等のテトラヒドロフリルアルキル基等の置換アルキル基；ベンジル基、フェネチル基、p-クロロベンジル基、p-ニトロベンジル基等のアラルキル基；2-クロロアリル基等の置換または非置換アルケニル基；アリル基；シクロヘキシル基、シクロペンチル基等のシクロアルキル基；フェニル基、p-メチルフェニル基、ナフチル基、m-メトキシフェニル基等の置換または非置換の芳香族炭化水素環基；チエニル基、カルバゾル基、イ

ンドリル基、フリル基等の芳香族複素環基；フェニルエチニル基、p-メトキシフェニルエチニル基等の置換基を有していてもよいフェニルエチニル基；塩素原子、臭素原子等のハロゲン原子；アミド基；メトキシ基、エトキシ基等の炭素数1～6のアルコキシ基；メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基等の炭素数1～6のアルコキシカルボニル基；置換基を有していてもよいアミノ基が挙げられるが、好ましくは、置換または非置換の芳香族炭化水素基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数1～6のアルキル基、ハロゲン原子、水素原子から選ばれる。

【0048】これらのアントラセン誘導体は公知の合成法により合成することができ、例えば、J.Org.Chem., 30巻, 1981頁, 1965年等に示されている。前記一般式(II-I)で表されるアントラセン誘導体の具体例を、以下の表-4に示すが、これらに限定するものではない。

【0049】

【表4】

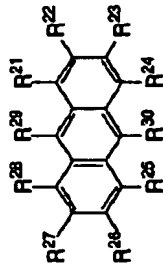


表-4

番号	R ²¹	R ²²	R ²³	R ²⁴	R ²⁵	R ²⁶	R ²⁷	R ²⁸	R ²⁹	R ³⁰
(31)	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
(32)	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-CH ₃	-CH ₃
(33)	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	Ph	Ph
(34)	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	Ph-CH ₃	Ph-CH ₃
(35)	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	Ph-OCH ₃	Ph-OCH ₃
(36)	Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	Ph	Ph
(37)	Ph	-H	-H	-H	Ph	-H	-H	-H	Ph	Ph
(38)	Ph	-H	-H	Ph	-H	-H	-H	-H	Ph	Ph

【0050】発光層5の膜厚は、通常、10~200 nm、好ましくは30~100 nmである。発光層も正孔輸送層と同様の方法で形成することができるが、通常は真空蒸着法が用いられる。発光層ホスト材料に上記ナフタセン誘導体、ペリレン誘導体、アントラセン誘導体をドーピングする方法としては、共蒸着による方法と蒸着源を予め所定の濃度で混合しておく方法がある。

【0051】上記各ドーパントが発光層中にドーピングされる場合、発光層の膜厚方向において均一にドーピングされるが、膜厚方向において濃度分布があっても構わない。例えば、正孔輸送層との界面近傍にのみドーピングしたり、逆

に、陰極界面近傍にドーピングしてもよい。

【0052】有機電界発光素子の発光効率をさらに向上させる方法として、発光層5の上にさらに他の電子輸送層6を積層することもできる(図2参照)。この電子輸送層6に用いられる化合物には、陰極からの電子注入が容易で、電子の輸送能力がさらに大きいことが要求される。このような電子輸送材料としては、オキサジアゾール誘導体(Appl. Phys. Lett., 55巻, 1489頁, 1989年他)やそれらをポリメタクリル酸メチル(PMMA)等の樹脂に分散した系(Appl. Phys. Lett., 61巻, 2793頁, 1992年)、フェナントロリン誘導体(特開平5-33

1459号公報)、2-*t*-ブチル-9,10-*N,N'*-ジシアノアントラキノンジイミン(Phys. Stat. Sol. (a), 142巻, 489頁, 1994年)、*n*型水素化非晶質炭化シリコン、*n*型硫化亜鉛、*n*型セレン化亜鉛等が挙げられる。電子輸送層6の膜厚は、通常、5~200nm、好ましくは10~100 nmである。

【0053】陰極7は、発光層5に電子を注入する役割を果たす。陰極7として用いられる材料は、前記陽極2に使用される材料を用いることが可能であるが、効率よく電子注入を行なうには、仕事関数の低い金属が好ましく、スズ、マグネシウム、インジウム、カルシウム、アルミニウム、銀等の適当な金属またはそれらの合金が用いられる。陰極7の膜厚は通常、陽極2と同様である。低仕事関数金属から成る陰極を保護する目的で、この上にさらに、仕事関数が高く大気に対して安定な金属層を積層することは素子の安定性を増す。この目的のために、アルミニウム、銀、ニッケル、クロム、金、白金等の金属が使われる。

【0054】陰極と発光層または電子輸送層のコンタクトを向上させるために、両者の間に界面層を設けることを行ってもよい。この陰極界面層に用いられる化合物としては、芳香族ジアミン化合物(特開平6-267658号公報)、キナクリドン化合物(特開平6-330031号公報)、ナフタセン誘導体(特開平6-330032号公報)、有機シリコン化合物(特開平6-325871号公報)、有機リン化合物(特開平5-325872号公報)、*N*-フェニルカルバゾール骨格を有する化合物(特開平8-60144号公報)、*N*-ビニルカルバゾール重合体(特開平8-60145号公報)等で構成された層が例示できる。界面層の膜厚は、通常、2~100nm、好ましくは5~30nmである。界面層を設ける代わりに、有機発光層及び電子輸送層の陰極界面近傍に上記界面層の材料を50重量%以上含む領域を設けてもよい。

【0055】

【実施例】次に、本発明を実施例によって更に具体的に説明するが、本発明はその要旨を越えない限り、以下の実施例の記載に限定されるものではない。

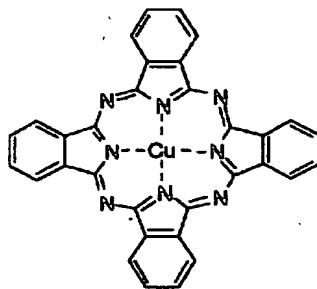
* 実施例 1

図1に示す構造を有する有機電界発光素子を以下の方法で作製した。ガラス基板上にインジウム・スズ酸化物(ITO)透明導電膜を120nm堆積したもの(ジオマテック社製;電子ビーム成膜品;シート抵抗15Ω)を通常のフォトリソグラフィ技術と塩酸エッチングを用いて2mm幅のストライプにパターニングして陽極を形成した。パターン形成したITO基板を、アセトンによる超音波洗浄、純水による水洗、イソプロピルアルコールによる超音波洗浄の順で洗浄後、窒素ブローで乾燥させ、最後に紫外線オゾン洗浄を行って、真空蒸着装置内に設置した。上記装置の粗排気を油回転ポンプにより行った後、装置内の真空度が 2×10^{-6} Torr (約 2.7×10^{-4} Pa)以下になるまで液体窒素トラップを備えた油拡散ポンプを用いて排気した。

【0056】上記装置内に配置されたモリブデンポートに入れた以下に示す銅フタロシアニン(H1)(結晶形はβ型)を加熱して蒸着を行った。真空度 2×10^{-6} Torr (約 2.7×10^{-4} Pa)、蒸着時間1分で蒸着を行ない、膜厚20nmの正孔注入層3を得た。

【0057】

【化9】

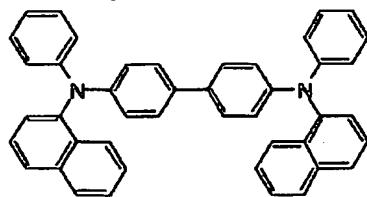


(H1)

【0058】次に、前記装置内に配置されたセラミックるつぼに入れた、以下に示す、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-*N*-フェニルアミノ]ビフェニル(H2)

【0059】

【化10】

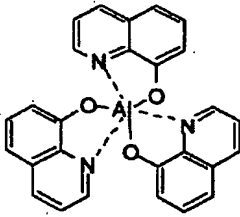


(H2)

【0060】をるつぼの周囲のタantal線ヒーターで加熱して蒸着を行った。この時のるつぼの温度は、250~260°Cの範囲で制御した。蒸着時の真空度 1.7×10^{-6} Torr (約 2.3×10^{-4} Pa)、蒸着時間3分30秒で膜厚60nmの正孔輸送層4を得た。引続き、発光層5のホスト材料として、以下の構造式に示すアルミニウムの8-ヒドロキシキノリン錯体、Al(C₉H₆NO)₃(E1)、

【0061】

【化11】

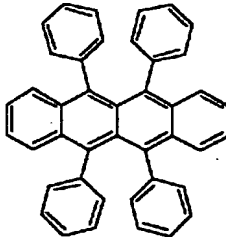


(E1)

【0062】ドーピング色素として以下の構造式に示すルブレ
ン(1)

【0063】

【化12】



(1)

【0064】を、各々、別々のるつばを用いて2元蒸着 20
を行った。この時のアルミニウムの8-ヒドロキシキノ
リン錯体のるつば温度は270~300℃の範囲で、ルブレ
ンのるつば温度は150~160℃の範囲で制御し、蒸着時の
真空度は 1.3×10^{-6} Torr (約 1.7×10^{-4} Pa)、蒸着時間は3
分10秒で、蒸着された発光層の膜厚は75nmであった。上
記の正孔注入層3、正孔輸送層4及び発光層5を真空蒸
着する時の基板温度は室温に保持した。

【0065】ここで、発光層5までの蒸着を行った素子
を一度前記真空蒸着装置内より大気中に取り出して、陰*

*極蒸着用のマスクとして2mm幅のストライプ状シャド
ーマスクを、陽極2のITOストライプとは直交するよ
うに素子に密着させて、別の真空蒸着装置内に設置して
有機層と同様にして装置内の真空度が 2×10^{-6} Torr (約 2.7×10^{-4} Pa) 以下になるまで排気した。続いて、陰極7と
して、マグネシウムと銀の合金電極を2元同時蒸着法に
よって膜厚44nmとなるように蒸着した。蒸着はモリブデ
ンボートを用いて、真空度 1×10^{-5} Torr (約 1.3×10^{-3} Pa)
a)、蒸着時間3分20秒で行った。また、マグネシウム
と銀の原子比は10:1.4とした。さらに続いて、装置の
10 真空を破らないで、アルミニウムをモリブデンボート
を用いて40nmの膜厚でマグネシウム・銀合金膜の上に積層
して陰極7を完成させた。アルミニウム蒸着時の真空度
は 1.5×10^{-5} Torr (約 2.0×10^{-3} Pa)、蒸着時間は1分20
秒であった。以上のマグネシウム・銀合金とアルミニウ
ムの2層型陰極の蒸着時の基板温度は室温に保持した。

【0066】以上の様にして、2mm×2mmのサイズの発
光面積部分を有する有機電界発光素子が得られた。得ら
れた素子の発光層中のルブレ濃度と各濃度に対する素
子の発光特性を表-5に示す。高輝度、高光効率を有
する素子が広いルブレ濃度範囲で得られた。また、発
光のピーク波長も一定した値を示し、製造に対して許容
範囲が従来のドーピング色素より拡大された。

【0067】比較例1

発光層中にルブレをドーピングしない他は、実施例1と同
様にして素子を作製した。この素子の発光特性を表-5
に示す。

【0068】

【表5】

表-5

	ルブレ ドーピング濃度 [wt.%]	発光輝度 [cd/m ²] @250mA/cm ²	発光効率 [lm/W] @100 cd/m ²	輝度/電流 [cd/A]	電圧 [V] @100 cd/m ²	発光ピーク [nm]
実施例1	0.5	16590	2.71	6.00	7	559
	1.3	19890	3.62	8.01	7	563
	2.7	13220	3.03	5.68	6	563
	4.7	12470	3.11	5.93	6	565
	6.9	11010	2.59	5.75	7	566
比較例1	ドーピングせず	7750	1.36	3.03	7	538

【0069】実施例2

発光層中のルブレ濃度を2.7%とした他は実施例1と同
様にして陰極7までを作製した。この素子を陰極蒸着
装置から取り出した後、図3に示す構造で素子の封止を

行った。先ず、既述の有機層蒸着装置に再び上記素子を
設置した後、これまでに示したのと同様にして、化合物
(E1)を膜厚200nmで陰極7の上に積層して、保護層
9とした。この時の真空度は 1.5×10^{-6} Torr (約 2.0×10^{-4} Pa)

Pa)、蒸着時間は7分30秒、基板温度は室温であった。素子を上記装置より大気中に取り出して、窒素グローブボックス中に入れて以下の作業を行った。

【0070】二液混合型の変性シリコン系弾性接着剤(セメダイン社製、商品名EPO1)を適当量混合した後、重量比で約30%のシリカゲル粉末(粒径50~300 μm)をフィラーとしてさらに加えた後、保護層9の上に厚さ約1mmで塗布して封止層10とした。なお、該弾性接着剤により得られた樹脂はJIS K 6911に規定される伸びが200%であり、JIS K 6301に規定されるショアーA硬度が78であり、ガラス転移点が -60°C であり、 $-40\sim +100^{\circ}\text{C}$ の温度領域でゴム状弾性を示した。室温で40分硬化させた後、外気遮断材層11として厚さ1.1mmのガラス板を、接着部分12にエポキシ樹脂(チバガイギー社製、商品名アラルダイト)を用いて貼り合わせ、素子の封止を完了させた。

【0071】この様にして封止した有機電界発光素子を大気中において、定電流駆動で電流密度を $15\text{mA}/\text{cm}^2$ として直流連続駆動させた。この時の初期輝度は $535\text{cd}/\text{m}^2$ であった。駆動時の輝度の経時変化を図4に示す。1000時間駆動後のダークスポットは0.1%未満であった。輝度の低下速度から輝度の半減時間は10,000時間程度が予想され、従来の有機EL素子と比べて飛躍的な駆動寿命が達成された。また、駆動電圧の上昇は380時間後で初期の7.2Vに対して、8.0Vであった。

【0072】比較例2

発光層にルブレンをドーブしない他は、実施例2と同様にして封止した有機電界発光素子を作製した。実施例2と同様にして、 $15\text{mA}/\text{cm}^2$ の電流密度で定電流連続駆動させた結果を図4に示す。この時の初期輝度は $380\text{cd}/\text{m}^2$ であった。輝度の半減時間は4時間と非常に短かった。

【0073】比較例3

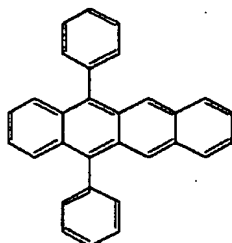
正孔注入層3を設けない他は実施例2と同様にして封止素子を作製した。この素子を大気中において、 $5\text{mA}/\text{cm}^2$ の電流密度で定電流駆動させた。この時の初期輝度は $310\text{cd}/\text{m}^2$ であった。駆動電圧の変化は、初期の12.8Vに対して300時間後で16.5Vと大きな増加が観測された。

【0074】実施例3

発光層中のドーブ色素として、以下に示すジフェニルナフタセン(8)

【0075】

【化13】



(8)

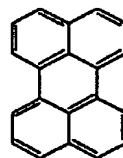
【0076】をルブレンの代わりに1.6重量%の濃度でドーブした他は実施例2と同様にして封止素子を作製した。この素子の発光のピーク波長は510nmであった。この素子を大気中において、 $15\text{mA}/\text{cm}^2$ の電流密度で定電流駆動させた。この時の初期輝度は $790\text{cd}/\text{m}^2$ であった。駆動時の輝度の経時変化を図5に示す。ルブレンドープ素子と同程度の駆動安定性を示した。

【0077】実施例4

発光層中のドーブ色素として、以下に示すペリレン(21)

【0078】

【化14】



(21)

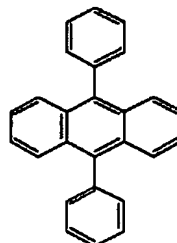
【0079】をルブレンの代わりに2.7重量%の濃度でドーブした他は実施例2と同様にして封止素子を作製した。この素子の発光のピーク波長は530nmであった。この素子を大気中において、 $15\text{mA}/\text{cm}^2$ の電流密度で定電流駆動させた。この時の初期輝度は $210\text{cd}/\text{m}^2$ であった。駆動時の輝度の経時変化を図5に示す。輝度の半減時間は1500時間であった。

【0080】実施例5

発光層中のドーブ色素として、以下に示す9,10-ジフェニルアントラセン(33)

【0081】

【化15】



(33)

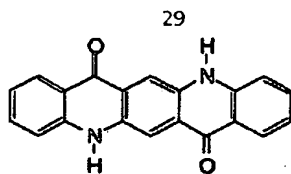
【0082】をルブレンの代わりに2.6重量%の濃度でドーブした他は実施例2と同様にして封止素子を作製した。この素子の発光のピーク波長は530nmであった。この素子を大気中において、 $15\text{mA}/\text{cm}^2$ の電流密度で定電流駆動させた。この時の初期輝度は $280\text{cd}/\text{m}^2$ であった。駆動時の輝度の経時変化を図5に示す。輝度の半減時間は1000時間であった。

【0083】比較例4

発光層中のドーブ色素として、以下に示すキナクリドン

【0084】

【化16】



【0085】をルブレンの代わりに2.4重量%の濃度でドーブした他は実施例2と同様にして封止素子を作製した。この素子の発光のピーク波長は520nmであった。この素子を大気中において、 $15\text{mA}/\text{cm}^2$ の電流密度で定電流駆動させた。この時の初期輝度は $480\text{cd}/\text{m}^2$ であった。駆動時の輝度の経時変化を図5に示す。輝度の半減時間は90時間であった。

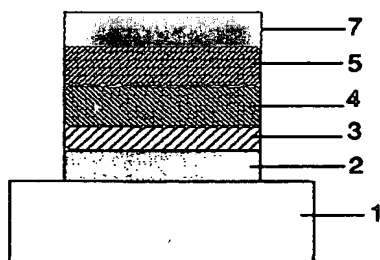
【0086】

【発明の効果】本発明の有機電界発光素子の封止方法によれば、特定の色素を含有する発光層を有するために、駆動の際に安定した発光特性を示す素子を得ることができる。従って、本発明による有機電界発光素子はフラットパネル・ディスプレイ（例えばOAコンピュータ用や壁掛けテレビ）や面発光体としての特徴を生かした光源（例えば、複写機的光源、液晶ディスプレイや計器類のバックライト光源）、表示板、標識灯への応用が考えられ、その技術的価値は大きいものである。

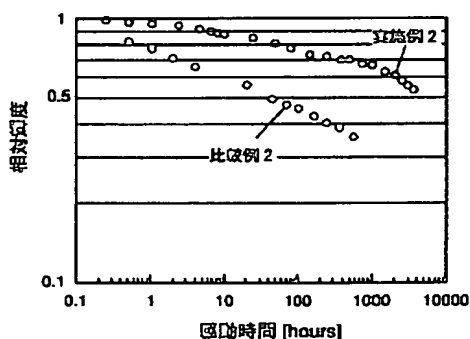
【図面の簡単な説明】

【図1】有機電界発光素子の一例を示した模式断面図。＊

【図1】



【図4】



＊【図2】有機電界発光素子の別の例を示した模式断面図。

【図3】本発明における有機電界発光素子の封止方法の一例を示した模式図。

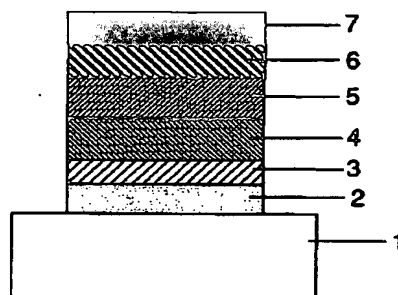
【図4】実施例2、比較例2における有機電界発光素子の大气中駆動時の発光輝度（初期輝度を1とした）の経時変化を示すグラフ。

【図5】実施例3～5及び比較例4における有機電界発光素子の大气中駆動時の発光輝度（初期輝度を1とした）の経時変化を示すグラフ。

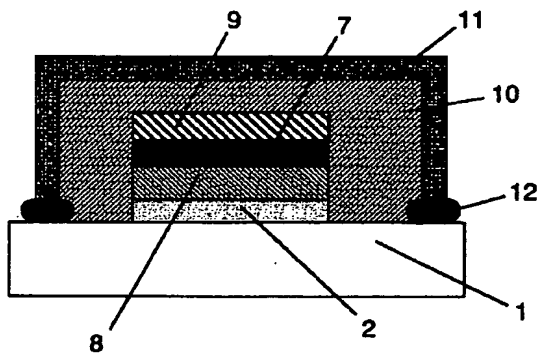
【符号の説明】

- 1 基板
- 2 陽極
- 3 正孔注入層
- 4 正孔輸送層
- 5 発光層
- 6 電子輸送層
- 7 陰極
- 8 有機層
- 9 保護層
- 10 封止層
- 11 外気遮断材層
- 12 接着部

【図2】



【図3】



【図5】

